

3.T  
Translation

11

PATENT COÖPERATION TREA

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference PC-8338	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/02319	International filing date (day/month/year) 10 April 2000 (10.04.00)	Priority date (day/month/year) 08 April 1999 (08.04.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC B32B 5/26, B29B 11/16, B29C 70/10		
Applicant MITSUBISHI RAYON CO., LTD.		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of <u>3</u> sheets, including this cover sheet.  <input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).  These annexes consist of a total of _____ sheets.
3. This report contains indications relating to the following items:  I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report II <input type="checkbox"/> Priority III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 23 October 2000 (23.10.00)	Date of completion of this report 05 April 2001 (05.04.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/02319

## I. Basis of the report

### 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☒ the international application as originally filed
- ☐ the description:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the claims:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

### 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

### 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

### 4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

### 5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/02319

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

Novelty (N)	Claims		YES
	Claims	1-8	NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	1-8	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-8	YES
	Claims		NO

### 2. Citations and explanations

Claims 1 to 8

Document 1: JP, 63-203844, A (Brochier SA) 23 August 1988 (23.08.88).

The inventions described in claims 1 to 8 are described herein (in particular, claims, page 6, lower right column, example 5).

Claims 1 to 3, 6 to 8

Document 2: JP, 6-501654, A (Pebrä GmbH Paul Braun), 24 February 1994 (24.02.94)

The inventions described in claims 1 to 3 and 6 to 8 are described herein.

Claims 4 to 8

Document 3: JP, 5-38717, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.) 19 February 1993 (19.02.93).

The inventions described in claims 4 to 8 are described herein.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/02319

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> B32B5/26, B29B11/16, B29C70/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> B32B1/00-35/00, B29B11/16, B29B15/08-15/14,  
C08J5/04-5/10, C08J5/24, B29C70/00-70/88

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-2000

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1995

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 63-203844, A (Brochier SA), 23 August, 1988 (23.08.88), Claims; page 6, lower right column; implementation example 5 & FR, 2605929, A & EP, 270411, A	1-8
X	JP, 6-501654, A (Pepra GmbH Paul Braun), 24 February, 1994 (24.02.94) & WO, 92-06845, A	1-3, 6-8
X	JP, 5-38717, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 19 February, 1993 (19.02.93) (Family: none)	4-8

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
"E" earlier document but published on or after the international filing date  
"I" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
27 June, 2000 (27.06.00)Date of mailing of the international search report  
04 July, 2000 (04.07.00)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## PCT COOPERATION TREATY

(4)

PCT

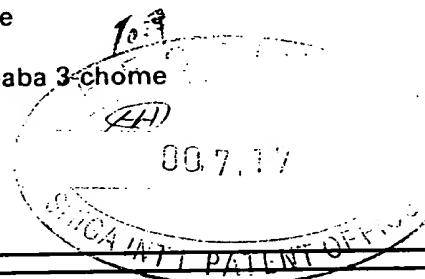
NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

SHIGA, Masatake  
OR Building  
23-3, Takadanobaba 3-chôme  
Shinjuku-ku  
Tokyo 169-8925  
JAPON



Date of mailing (day/month/year) 11 July 2000 (11.07.00)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference PC-8338	
International application No. PCT/JP00/02319	International filing date (day/month/year) 10 April 2000 (10.04.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 08 April 1999 (08.04.99)
Applicant MITSUBISHI RAYON CO., LTD. et al	

- The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

Priority date	Priority application No.	Country or regional Office or PCT receiving Office	Date of receipt of priority document
08 April 1999 (08.04.99)	11/101617	JP	26 June 2000 (26.06.00)

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Carlos Naranjo

Telephone No. (41-22) 338.83.38

003402462

**PCT**

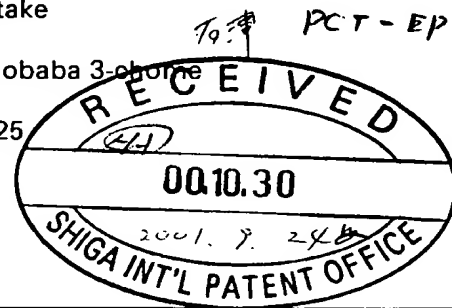
**NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE  
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL  
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES**

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

SHIGA, Masatake  
OR Building  
23-3, Takadanobaba 3-chome  
Shinjuku-ku  
Tokyo 169-8925  
JAPON



Date of mailing (day/month/year) 19 October 2000 (19.10.00)		
Applicant's or agent's file reference PC-8338		<b>IMPORTANT NOTICE</b>
International application No. PCT/JP00/02319	International filing date (day/month/year) 10 April 2000 (10.04.00)	Priority date (day/month/year) 08 April 1999 (08.04.99)
Applicant MITSUBISHI RAYON CO., LTD. et al		

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

EP,JP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 19 October 2000 (19.10.00) under No. WO 00/61363

**REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)**

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a **demand for international preliminary examination** must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

**REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))**

If the applicant wishes to proceed with the international application in the **national phase**, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

<b>The International Bureau of WIPO</b> 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer  <b>J. Zahra</b>
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner  
US Department of Commerce  
United States Patent and Trademark  
Office, PCT  
2011 South Clark Place Room  
CP2/5C24  
Arlington, VA 22202  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE  
in its capacity as elected Office

<b>Date of mailing</b> (day/month/year) 13 November 2000 (13.11.00)	
<b>International application No.</b> PCT/JP00/02319	<b>Applicant's or agent's file reference</b> PC-8338
<b>International filing date</b> (day/month/year) 10 April 2000 (10.04.00)	<b>Priority date</b> (day/month/year) 08 April 1999 (08.04.99)
<b>Applicant</b> MITANI, Kazutami et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:  
23 October 2000 (23.10.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was  
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

<b>The International Bureau of WIPO</b> 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	<b>Authorized officer</b> Henrik Nyberg Telephone No.: (41-22) 338.83.38
--	--

3T  
Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference PC-8338	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/02319	International filing date (day/month/year) 10 April 2000 (10.04.00)	Priority date (day/month/year) 08 April 1999 (08.04.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC B32B 5/26, B29B 11/16, B29C 70/10		
Applicant MITSUBISHI RAYON CO., LTD.		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 3 sheets, including this cover sheet.

☐ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of \_\_\_\_\_ sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 23 October 2000 (23.10.00)	Date of completion of this report 05 April 2001 (05.04.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/02319

## I. Basis of the report

### 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☒ the international application as originally filed
- ☐ the description:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the claims:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

### 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

### 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

### 4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

### 5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.  
PCT/JP00/02319

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

Novelty (N)	Claims		YES
	Claims	1-8	NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	1-8	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-8	YES
	Claims		NO

### 2. Citations and explanations

#### Claims 1 to 8

Document 1: JP, 63-203844, A (Brochier SA) 23 August 1988 (23.08.88).

The inventions described in claims 1 to 8 are described herein (in particular, claims, page 6, lower right column, example 5).

#### Claims 1 to 3, 6 to 8

Document 2: JP, 6-501654, A (Pepra GmbH Paul Braun), 24 February 1994 (24.02.94)

The inventions described in claims 1 to 3 and 6 to 8 are described herein.

#### Claims 4 to 8

Document 3: JP, 5-38717, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.) 19 February 1993 (19.02.93).

The inventions described in claims 4 to 8 are described herein.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/02319

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> B32B5/26, B29B11/16, B29C70/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> B32B1/00-35/00, B29B11/16, B29B15/08-15/14,  
C08J5/04-5/10, C08J5/24, B29C70/00-70/88

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1995

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 63-203844, A (Brochier SA), 23 August, 1988 (23.08.88), Claims; page 6, lower right column; implementation example 5 & FR, 2605929, A & EP, 270411, A	1-8
X	JP, 6-501654, A (Pebrä GmbH Paul Braun), 24 February, 1994 (24.02.94) & WO, 92-06845, A	1-3, 6-8
X	JP, 5-38717, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 19 February, 1993 (19.02.93) (Family: none)	4-8

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
27 June, 2000 (27.06.00)Date of mailing of the international search report  
04 July, 2000 (04.07.00)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

P C T

## 国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
[PCT36条及びPCT規則70]

REC'D 20 APR 2001

WIPO

PCT

出願人又は代理人 の書類記号 PC-8338	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO0/02319	国際出願日 (日.月.年) 10.04.00	優先日 (日.月.年) 08.04.99
国際特許分類(IPC) Int.Cl. <sup>7</sup> B32B5/26, B29B11/16, B29C70/10		
出願人(氏名又は名称) 三菱レイヨン株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。

2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。

☐ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。  
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)  
この附属書類は、全部で \_\_\_\_\_ ページである。

3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
- II ☐ 優先権
- III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- IV ☐ 発明の単一性の欠如
- V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- VI ☐ ある種の引用文献
- VII ☐ 国際出願の不備
- VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 23.10.00	国際予備審査報告を作成した日 05.04.01	
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員) 川端 康之 電話番号 03-3581-1101 内線 3430	4S 9156

様式PCT/IPEA/409(表紙)(1998年7月)

## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
 PCT規則70.16, 70.17)

☒ 出願時の国際出願書類

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 出願時に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 出願時に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)

## V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)

請求の範囲

請求の範囲

1-8

有  
無

進歩性(IS)

請求の範囲

請求の範囲

1-8

有  
無

産業上の利用可能性(IA)

請求の範囲

請求の範囲

1-8

有  
無

## 2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

## 請求の範囲1-8

文献1/JP, 63-203844, A (プロシエール・ソシエテ・アノニム)  
23. 8月. 1988 (23. 08. 88)当該発明が記載されている。(特に、特許請求の範囲、第6頁右下欄、実施例5  
参照。)

## 請求の範囲1-3, 6-8

文献2/JP, 6-501654, A (ベブラ ゲゼルシャフト ミット  
ベシュレンクテル ハフツング バウル ブラウン)  
24. 2月. 1994 (24. 02. 94)

当該発明が記載されている。

## 請求の範囲4-8

文献3/JP, 5-38717, A (旭化成工業株式会社)  
19. 2月. 1993 (19. 02. 93)

当該発明が記載されている。

## 国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)  
〔PCT18条、PCT規則43、44〕

出願人又は代理人 の書類記号 PC-8338	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO0/02319	国際出願日 (日.月.年) 10.04.00	優先日 (日.月.年) 08.04.99
出願人(氏名又は名称) 三菱レイヨン株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

## 1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 \_\_\_\_\_ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☒ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>7</sup> B32B5/26, B29B11/16, B29C70/10

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>7</sup> B32B1/00-35/00, B29B11/16, B29B15/08-15/14,  
C08J5/04-5/10, C08J5/24, B29C70/00-70/88

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-2000年

日本国公開実用新案公報 1971-1995年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 63-203844, A (プロシエール・ソシエテ・アノニム) 23. 8月. 1988 (23. 08. 88) 特許請求の範囲、第6頁右下欄、実施例5 & FR, 2605929, A & EP, 270411, A	1-8
X	JP, 6-501654, A (ベブラ ゲゼルシャフト ミット ベシュレンクテル ハフツング バウル ブラウン) 24. 2月. 1994 (24. 02. 94) & WO, 92-06845, A	1-3, 6-8

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

27. 06. 00

国際調査報告の発送日

04.07.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

川端 康之

4S 9156

電話番号 03-3581-1101 内線 3430



C (続き). 関連すると思われる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 5-38717, A (旭化成工業株式会社) 19. 2月. 1993 (19. 02. 93) ファミリーなし	4-8



<b>(51) 国際特許分類7</b> <b>B32B 5/26, B29B 11/16, B29C 70/10</b>	<b>A1</b>	<b>(11) 国際公開番号</b> <b>WO00/61363</b>  <b>(43) 国際公開日</b> 2000年10月19日(19.10.00)
<b>(21) 国際出願番号</b> PCT/JP00/02319  <b>(22) 国際出願日</b> 2000年4月10日(10.04.00)  <b>(30) 優先権データ</b> 特願平11/101617      1999年4月8日(08.04.99)      JP  <b>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について)</b> 三菱レイヨン株式会社 (MITSUBISHI RAYON CO., LTD.)[JP/JP] 〒108-8506 東京都港区港南一丁目6番41号 Tokyo, (JP) <b>(72) 発明者 ; および</b> <b>(75) 発明者 / 出願人 (米国についてののみ)</b> 三谷和民(MITANI, Kazutami)[JP/JP] 後藤和也(GOTO, Kazuya)[JP/JP] 〒461-8677 愛知県名古屋市中区砂田橋四丁目1番60号 三菱レイヨン株式会社 商品開発研究所内 Aichi, (JP) <b>(74) 代理人</b> 弁理士 志賀正武, 外(SHIGA, Masatake et al.) 〒169-8925 東京都新宿区高田馬場三丁目23番3号 ORビル Tokyo, (JP)		<b>(81) 指定国</b> JP, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)  添付公開書類 国際調査報告書
<b>(54) Title: PREFORM FOR COMPOSITE MATERIAL AND COMPOSITE MATERIAL</b>  <b>(54) 発明の名称</b> 複合材料用プリフォームおよび複合材料  <b>(57) Abstract</b> A preform which is capable of being molded by resin transfer molding and of giving a composite having excellent strength and excellent interlaminar peeling resistance. The preform, which is for producing a fiber-reinforced composite, comprises superposed layers of a reinforcement comprising reinforcing fibers and has, between these layers, a layer comprising a thermoplastic resin and having pores so as not to inhibit a liquid resin from moving therethrough. The preform is molded to give a fiber-reinforced composite.		

レジントランスファー成形法による成形が可能で、優れた強度の発現性と、優れた耐層間剥離特性とを有する複合材料とすることのできるプリフォームを提供する。強化繊維からなる補強体が積層構造を形成している繊維強化複合材料用プリフォームにおいて、その層間に熱可塑性樹脂からなり液状樹脂の移動を妨げない程度に間隙を有する層が存在する複合材料用プリフォーム、そのプリフォームを成形した繊維強化複合材料。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AG	アンティグア・バーブーダ	DZ	アルジェリア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AL	アルバニア	EE	エストニア	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AU	オーストラリア	FR	フランス	LS	レソト	SK	スロヴァキア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BE	ベルギー	GE	グルジア	MA	モロッコ	TD	チャード
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BJ	ベナン	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BR	ブラジル	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TR	トルコ
BY	ベラルーシ	GW	ギニア・ビサウ		共和国	TT	トリニダード・トバゴ
CA	カナダ	HR	クロアチア	ML	マリ	UA	ウクライナ
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	UG	ウガンダ
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MR	モーリタニア	US	米国
CH	スイス	IE	アイルランド	MW	マラウイ	UZ	ウズベキスタン
CI	コートジボアール	IL	イスラエル	MX	メキシコ	VN	ヴェトナム
CM	カメルーン	IN	インド	MZ	モザンビーク	YU	ユーゴスラヴィア
CN	中国	IS	アイスランド	NE	ニジェール	ZA	南アフリカ共和国
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NL	オランダ	ZW	ジンバブエ
CU	キューバ	JP	日本	NO	ノルウェー		
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド		
CZ	チェッコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KR	韓国	RO	ルーマニア		

## 明 細 書

## 複合材料用プリフォームおよび複合材料

## 5 技術分野

本発明は、レジントランスファー成形に好適な複合材料用プリフォームならびにそのプリフォームを成形してなる繊維強化複合材料に関する。

## 背景技術

10 従来、レジントランスファー成形用プリフォーム材料としては、ランダムマットやスワールマットが用いられて来たが、高い強度もしくは弾性率が要求される場合には、強化繊維が比較的直線的に配置された長繊維織物の積層体や、織物の積層体にステッチを施して固定したものが用いられるようになった。また近年は、複雑な形状をしたブレーディング材や、三次元織物等の高度な特性を発揮できる  
15 プリフォームの開発が進められている。

平織や、縐子織り等の強化繊維織物の積層体で強化された複合材料は、衝撃負荷等による層間剥離の発生がマトリックス樹脂の靱性に強く依存するため、靱性向上が容易でない熱硬化性樹脂をマトリックス樹脂に用いるレジントランスファー成形で成形された複合材料に高度な耐層間剥離性を付与することは必ずしも容易ではなかった。  
20

積層した織物を厚み方向にステッチして一体化したプリフォームは、層間の剥離を抑制する効果は認められるが、立体的な形状に積層した織物をステッチするためには特殊なマシンを必要とする上、厚み方向のステッチ量の増加による耐層間剥離性の向上と積層面内方向の強度との間にトレードオフの関係があることが  
25 知られている。

ブレーディング材や三次元織物は、複合材料の厚み方向にも強化繊維の配置が可能で、高度な特性を持つ複合材料を与えるが、大型の構造物に相当するプリフォームを製造することが可能な装置は巨大なものになり、プリフォーム単位量あたりに膨大なコストが掛ることが予想されている。

また、熱硬化性樹脂を含浸した強化繊維のシート状中間材料（プリプレグ）を積層硬化して得られる複合材料においては、熱可塑性樹脂のフィルム、微粒子、繊維、不織布等をプリプレグ表面またはプリプレグの積層過程でプリプレグ間に配する方法で強化繊維の積層体の層間に熱可塑性樹脂を配置して、耐層間剥離特性を向上する技術が知られているが、強化繊維でプリフォームを構成した後にマトリックス樹脂を注入するレジントランスファー成形では、マトリックス樹脂の注入時に十分な樹脂の流れが確保されなくてはならないので、プリプレグに用いられる技術をそのまま適用することはできない。

#### 10 発明の開示

本発明の目的とするところは、レジントランスファー成形法による成形が可能で、優れた強度の発現性と、優れた耐層間剥離特性を有する複合材料とすることができる複合材料用プリフォームおよびそのプリフォームから上記特性を有する複合材料を提供することにある。

15 本発明者らは、優れた強度の発現性と優れた耐層間剥離特性を持った複合材料を与える複合材料用プリフォームについて鋭意検討した結果、液状樹脂の移動を妨げない程度に間隙を有する熱可塑性樹脂層を層間に配置した強化繊維の積層体が、レジントランスファー成形のプリフォームとして好適で、前記目的を達成できることを見だし本発明に到達した。

20 すなわち本発明は、強化繊維からなる補強体が積層構造を形成している繊維強化複合材料用プリフォームにおいて、その層間に熱可塑性樹脂からなり液状樹脂の移動を妨げない程度に間隙を有する層が存在することを特徴とする複合材料用プリフォームにある。

さらに本発明は、上記発明の複合材料用プリフォームを成形した繊維強化複合材料にある。

#### 発明を実施するための最良の形態

本発明の複合材料用プリフォームに用いられる強化繊維からなる補強体としては、炭素繊維、ガラス繊維、アラミド繊維等の強度および／または弾性率に優れ

た繊維が用いられる。これら繊維の中でも高い強度、弾性率を得るために炭素繊維を用いることが好ましい。

これら繊維からなる強化繊維は、一般に、数十本から数万本の繊維束（トウ）として供給されるが、繊維トウを捻げて、または、そのまま方向を揃えて並べて層を形成し、それぞれ、異なる方向に揃えられた層を、重ねて積層構造を形成してもよい。また、予め形成した1軸、2軸または3軸の平面織物とし、これを重ねて積層構造を形成することもできる。ここで1軸織物とは平面上に1方向（縦方向）に揃えて並んだ繊維または繊維トウを、横乃至斜め方向に少量の糸条（緯糸）で織り、もしくは横乃至斜め方向の少量の糸条に接着して固定したもので、実質的に縦方向のみの繊維（トウ）のみからなるシート材を指す。

本発明において上記強化繊維からなる補強体の層間に設ける、熱可塑性樹脂層を形成する樹脂としては、多孔質フィルム、繊維、網み目状物または編み目状物に加工可能な熱可塑性樹脂であれば特に限定はないが、ポリアミド、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリイミド等の高い靱性を有する熱可塑性樹脂から、目的とする複合材料に要求される使用環境、また、複合材料に用いるマトリックス樹脂によって選択することができる。

強化繊維からなる補強体の層間に配置する上記熱可塑性樹脂層は、液状樹脂の移動を妨げない程度に適度に間隙を有する必要がある。ここで液状樹脂の移動を妨げないとは、本発明のプリフォームをレジントランスファー成形する際の液状マトリックス樹脂注入時に、プリフォーム中の液状マトリックス樹脂の流れを妨げないの謂いであり、強化繊維からなる補強体中に流体が流れるときに発生する抵抗に比べて、熱可塑性樹脂層中に流体が流れるときに発生する抵抗が著しく大きくなればよい。このような特性を持つ熱可塑性樹脂層の形態としては、多孔質フィルム、繊維、網み目または編み目状物のほか、強化繊維からなる補強体の層間に形成された繊維の配列体、短繊維の集合体、粉末の集合体を挙げることができる。

強化繊維からなる補強体の層間に配置する上記熱可塑性樹脂層を形成する樹脂の量は、1つの層間当たりの面密度で表して、 $1\text{ g/m}^2$  から  $50\text{ g/m}^2$  の範囲が好ましい。 $1\text{ g/m}^2$  より少ない場合には層間剥離を抑制する破壊靱性の発

現が十分でなく、 $50 \text{ g/m}^2$  を超える場合には層間が厚くなり複合材料とした場合の層間の応力伝達が不十分となる。

強化繊維からなる補強体の層間に配置する熱可塑性樹脂層を、熱可塑性樹脂の繊維で構成する場合には、その単繊維の太さは特に制限されるものではないが、  
5 太さ1 d から50 d の範囲のものが好ましい。1 d より細い繊維はレジントランスファー成形時のマトリックス樹脂の流れによって流され易く、時には切断して偏在化する事があり、50 d より太い場合は、繊維の熱可塑性樹脂とマトリックス樹脂の界面が少なくなり耐層間剥離特性の発現が難しくなる。

強化繊維からなる補強体の層間に配置する熱可塑性樹脂繊維は、単繊維で配置  
10 する事も可能であるが、繊維束（トウ）として用いる事もできる。熱可塑性樹脂の繊維トウを用いる場合、これを平面状に開繊して、または、チョップ状にして均一分散させて、強化繊維からなる補強体層間に均一に配置するほかに、繊維トウ状のまま、または、熱可塑性樹脂繊維束の開繊後も繊維トウ間に間隙を残して、または、繊維を織物にして、強化繊維からなる補強体層間に配置して用いること  
15 ができる。具体的には強化繊維からなる1軸織物の強化繊維方向に直交する方向に熱可塑性樹脂繊維トウを間隔を開けて配列する形態が挙げられる。

繊維トウ状のまま、または、熱可塑性樹脂繊維束の開繊後も繊維トウ間に間隙を残して、または、繊維を織物にして、強化繊維からなる補強体層間に配置して用いる場合は、熱可塑性樹脂の繊維束が強化繊維からなる補強体層の表面を覆う  
20 割合が、強化繊維からなる補強体層の表面の一边が1 cmの任意の正方形において20%を超えることが望ましい。

強化繊維からなる補強体の層間に上記熱可塑性樹脂層を配置する方法としては、強化繊維からなる補強体層と熱可塑性樹脂からなる層をそれぞれ交互に形成しつつ重ねる方法や、強化繊維からなる補強体と熱可塑性樹脂からなるシートをそれぞれ別に形成してこれらを交互に積み重ねる方法や、強化繊維からなる補強体シートの少なくとも一方の表面に熱可塑性樹脂からなる層を形成した強化繊維と熱  
25 可塑性樹脂からなるシートを作成し、これを積み重ねる方法を用いることができる。熱可塑性樹脂層を形成する基材に熱可塑性樹脂の繊維またはテープを用いる場合には、強化繊維と熱可塑性樹脂繊維またはテープを経緯糸として織物を構成

し、これを積み重ねることもできる。

本発明の積層構造複合材料用プリフォームは、レジントランスファー成形されることによって優れた耐層間剥離特性を持った複合材料を与えることを特徴とするが、強化繊維からなる補強体層間を貫通する方向にステッチを施すこともできる。

本発明に使用する複合材料のマトリックス樹脂としては、不飽和ポリエステル樹脂、ビニルエステル樹脂、エポキシ樹脂、ビスマレイミド樹脂、イソシアネート樹脂等の熱硬化性樹脂であってレジントランスファー成形に用いることが出来る樹脂であれば限定は無い。特に、本発明によれば靱性のあまり高くないマトリックス樹脂を用いた場合にも優れた耐層間剥離特性を持った複合材料が得られるので、マトリックス樹脂の選択範囲を広く採ることができる。

本発明になる積層構造複合材料用プリフォームは、上記マトリックス樹脂を用いてレジントランスファー成形することによって高強度で、耐層間剥離特性に優れた繊維強化複合材料とすることができる。

## 実施例

以下、実施例、比較例を挙げて本発明をさらに詳しく説明する。

なお、実施例によって得られた繊維強化複合材料の評価項目、およびその測定法は、以下のようにして行った。

### 〔耐層間剥離性〕

平面に成形した複合材料に、先端が半径7.94mmの半球形状をした質量4.9kgの鉄製の錘を落とし、そのときに生じる層間剥離部分の面積（損傷面積）を超音波探傷装置によって透過法で計測し、その面積を、熱可塑性樹脂による層間補強の無い場合（参照例）と比較することによって評価した。鉄製の錘の落下によって与えられる衝撃は、次の2種の条件について行った。

「条件1」錘を32cmの高さから自由落下させた場合。

「条件2」錘を64cmの高さから自由落下させた場合。



## 〔衝撃後圧縮強度（CAI）の測定〕

幅4インチ、長さ6インチの長方形試験板の中央に、上記条件2の衝撃を負荷した後SACMA推奨測定法（SRM2）に準じて測定した。

## 5   〔参照例〕

補強繊維織物として炭素繊維MR50K4.5M（三菱レイヨン（株）製、商品名）を、5枚縹子織りにした目付145 g/m<sup>2</sup>の織物を用いた。金型内に該補強繊維織物を〔（0/90）/（±45）〕8Sの積層構成で積み重ねて、金型を閉じ、変性エポキシ樹脂#985（三菱レイヨン（株）製、商品名）を金  
10 型側面のゲートより樹脂を95℃で加圧注入し、その後180℃で2時間硬化した。成形物を金型から取り出して、バリ部分を除いて、評価用試験板を得た。

試験板に前述の衝撃を加え、超音波探傷装置で損傷面積を求めこれを100とし、同じ損傷付与条件の間で実施例と比較し相対値で表示した。

## 15   〔実施例1〕

層間補強用熱可塑性樹脂として2.64 d/36フィラメントのナイロン12の長繊維からなる目付10 g/m<sup>2</sup>の平織布（打込み本数：緯糸、経糸共に1インチ当たり12本）を用意した。金型内に、参照例で用いたものと同じ補強繊維織物と、上記層間補強用熱可塑性樹脂繊維織物を交互に積み重ねて積層し、最外  
20 面は両面とも補強繊維織物としたほかは、参照例と同様にして複合材料を作成した。得られた複合材料の耐層間剥離性をテストしたところ、損傷面積は参照例に比べ、条件1の場合は73%に、条件2の場合は68%に抑制された。

作成した複合材料の断面を観察したところ、ボイド無く成形されており、層間補強用熱可塑性樹脂繊維物によって、液状樹脂の移動が妨げられていないことが確  
25 認された。

## 〔実施例2〕

層間補強用熱可塑性樹脂として実施例1に用いたものと同じナイロン12繊維の目付10 g/m<sup>2</sup>の1軸織物（打込み本数：経糸1インチ当たり23本、緯糸

2 インチ当たり 1 対の簾織り) を用いたほかは実施例 1 と同様にして複合材料を作成した。耐層間剥離性テストの結果、損傷面積は参照例に比べ、条件 1 の場合は 70% に、条件 2 の場合は 65% に抑制された。

5 作成した複合材料の断面を観察したところ、ボイド無く成形されており、層間補強用熱可塑性樹脂織物によって、液状樹脂の移動が妨げられていないことが確認された。

#### [実施例 3]

10 層間補強用熱可塑性樹脂として実施例 1 に用いたものと同じナイロン 12 繊維を 10 mm 長さにチョップして水に分散させ、目付 10 g/m<sup>2</sup> のシートに抄造し、熱プレスして得た不織布を用いたほかは実施例 1 と同様にして複合材料を作成した。耐層間剥離性テストの結果、損傷面積は参照例に比べ、条件 1 の場合は 69% に、条件 2 の場合は 66% に抑制された。

15 作成した複合材料の断面を観察したところ、ボイド無く成形されており、層間補強用熱可塑性樹脂不織布によって、液状樹脂の移動が妨げられていないことが確認された。

#### [実施例 4]

20 層間補強用熱可塑性樹脂として実施例 1 に用いたものと同じナイロン 12 繊維を 10 mm 長さにチョップし、これを、参照例で用いた物と同じ炭素繊維からなる強化繊維織物上に 10 g/m<sup>2</sup> になるように散布した上に、該強化繊維を重ねる操作を繰り返したほかは実施例 1 と同様にして複合材料を作成した。耐層間剥離性テストの結果、損傷面積は参照例に比べ、条件 1 の場合は 72% に、条件 2 の場合は 68% に抑制された。

25 作成した複合材料の断面を観察したところ、ボイド無く成形されており、層間補強用熱可塑性樹脂繊維チョップによって、液状樹脂の移動が妨げられていないことが確認された。

#### [実施例 5]

層間補強用熱可塑性樹脂として実施例 1 に用いたものと同じナイロン 12 繊維を、シリコンゴムシート上に、一方向に  $5 \text{ g/m}^2$ 、 $2.1 \text{ mm}$  間隔で並べ、その上に直交方向に同ピッチで並べて、これを熱プレスして得た網状物を用いたほかは実施例 1 と同様にして複合材料を作成した。耐層間剥離性テストの結果、  
5 損傷面積は参照例に比べ、条件 1 の場合は  $66\%$  に、条件 2 の場合は  $63\%$  に抑制された。

作成した複合材料の断面を観察したところ、ボイド無く成形されており、層間補強用熱可塑性樹脂網状物によって、液状樹脂の移動が妨げられていないことが確認された。

10

#### [実施例 6]

層間補強用熱可塑性樹脂として目付  $13.9 \text{ g/m}^2$  のナイロン 12 フィルムに、縦横  $5 \text{ mm}$  間隔で基盤目状に直径  $3 \text{ mm}$  の穴をあけて得た目付  $10 \text{ g/m}^2$  のフィルムを用いたほかは実施例 1 と同様にして複合材料を作成した。耐層間剥  
15 離性テストの結果、損傷面積は参照例に比べ、条件 1 の場合は  $65\%$  に、条件 2 の場合は  $61\%$  に抑制された。

作成した複合材料の断面を観察したところ、ボイド無く成形されており、層間補強用熱可塑性樹脂多孔フィルムによって、液状樹脂の移動が妨げられていないことが確認された。

20

以上の各例において用いた層間熱可塑性樹脂の形態、使用量および耐層間剥離性テストの結果を一括して表 1 に示した。

表 1

	層間熱可塑性樹脂形態	熱可塑性樹脂層目付 ( $\text{g}/\text{m}^2$ )	損傷面積 (相対値)	
			条件 1	条件 2
参照例	無 し	0	100	100
実施例 1	平 織 り	10	73	68
実施例 2	1 軸 織 物	10	70	65
実施例 3	不 織 布	10	69	66
実施例 4	チョップドファイバー	10	72	68
実施例 5	網 状 物	10	66	63
実施例 6	穴あきフィルム	10	65	61

## [比較例 1]

補強繊維織物は参照例と同じものを、マトリックス樹脂として変性ビスマレイミド樹脂 #2010 (三菱レイヨン (株) 製、商品名) を用いて、側面に排気口を備えた外枠と底板からなる下金型内に、未反応樹脂の板を形成し、その上に補強繊維織物を積層したプリフォームを置き、滑り可能な落とし蓋型の上金型を閉じて、プリフォーム部分の空気を側面の排気口から排出し、プリフォーム部分を真空に保持したまま  $100^{\circ}\text{C}$  に加熱することで、液状樹脂をプリフォームの厚さ方向に流して含浸した。その後金型を  $180^{\circ}\text{C}$  に加熱し、6 時間かけて液状樹脂を硬化し、金型から複合材料を取り出した。その後  $232^{\circ}\text{C}$ 、6 時間の熱風加熱を行って、後硬化し、評価用試験板を得た。

試験板に条件 2 の衝撃を加え損傷面積を求めこれを実施例と比較した。

## [実施例 7]

層間補強用熱可塑性樹脂としてポリイミド樹脂 (Matrimid 5218) (チバガイギー社製、商品名) の太さ  $3.96\text{d}$  の繊維を 48 本束ねたトウを目付  $10\text{g}/\text{m}^2$  (打込み：緯糸、経糸共に 1 インチ当たり 6 本) の平織りしたものを用意した。

金型内の未反応樹脂の板の上に補強繊維織物と上記層間補強用熱可塑性樹脂織物を交互に積み重ねて積層し、最外面は上下面ともに補強繊維織物となるようにした積層体を、比較例 1 と同様にして成形並びに後硬化して、評価用試験板を得

た。試験板に条件 2 の衝撃を加え損傷面積を求めたところ比較例 1 に比べ 83 % に抑制された。

[実施例 8]

- 5 層間補強用熱可塑性樹脂織物として、実施例 7 に用いたものと同じ繊維を目付  $20 \text{ g/m}^2$  (打込み：緯糸、経糸共に 1 インチ当たり 12 本) に平織りしたものを用いたほかは実施例 7 と同様にして評価用試験板を得た。試験板に条件 2 の衝撃を加え損傷面積を求めたところ比較例 1 に比べ 60 % に抑制された。

10 [実施例 9]

層間補強用熱可塑性樹脂織物として、実施例 7 に用いたものと同じ繊維を目付  $30 \text{ g/m}^2$  (打込み：緯糸、経糸共に 1 インチ当たり 18 本) に平織りしたものを用いたほかは実施例 7 と同様にして評価用試験板を得た。試験板に条件 2 の衝撃を加え損傷面積を求めたところ比較例 1 に比べ 41 % に抑制された。

- 15 以上、比較例 1、実施例 7～9 で使用した層間補強用熱可塑性樹脂織物の使用量、条件 2 の衝撃を加え場合の損傷面積を一括して表 2 に示した。

表 2

	実施例 7	実施例 8	実施例 9	比較例 1
熱可塑性樹脂繊維織物目付	$10 \text{ g/m}^2$	$20 \text{ g/m}^2$	$30 \text{ g/m}^2$	$0 \text{ g/m}^2$
条件 2 損傷面積 (相対値)	83	60	41	100

[比較例 2]

- 20 補強繊維織物として炭素繊維 TR50S12M (三菱レイヨン (株) 製、商品名) の目付  $145 \text{ g/m}^2$  の 1 軸織物を用い、金型内に補強繊維織物を [45/0-45/90] 4S の構成で積層したほかは参照例と同様にして成形して複合材料を得た。条件 2 の衝撃により損傷を加えた後に測定した圧縮強度は 188 MPa であった。

[比較例 3]

比較例 2 で用いたものと同じ補強繊維織物を [45/0/-45/90] 4S の構成で積み重ねたものを、炭素繊維 TR50S12M (三菱レイヨン (株) 製、商品名) の繊維糸で縫い、列間隔 5 mm、5 mm 目で単縫い (10 mm 周期) したものを、金型内に設置したほかは参照例と同様にして成形した。損傷面積は、  
5 条件 2 の場合で比較例 2 に比べ 35 % に抑制されたが、残留圧縮強度は 217 MPa であった。

#### [実施例 10]

層間補強用熱可塑性樹脂織物として実施例 1 で用いたものと同じ織物を用いた。  
10 金型内に比較例 2 に用いた補強繊維織物と、層間補強用熱可塑性樹脂織物を交互に積み重ね、最外面は上下面とも補強繊維織物となるように積層したほかは比較例 2 と同様にして試験板を作成した。損傷面積は、条件 2 の場合で比較例 2 に比べ 63 % に抑制され、残留圧縮強度は 255 MPa であった。

表 3 に比較例 2、3、実施例 10 の評価結果を一括して示した。

15

#### [実施例 11]

比較例 2 で用いたものと同じ補強繊維織物の両面に、実施例 1 で用いたナイロンフィラメントに参照例で用いた樹脂を 1 m あたり 0.01 g 含浸した収束ヤーンを、1 インチ当たり 12 本のピッチで補強繊維と直角方向に貼り付けたシート  
20 を、金型内に [45/0/-45/90] 4S の構成で積み重ねたほかは比較例 2 と同様にして試験板を作成した。損傷面積は、条件 2 の場合で比較例 2 に比べ 60 % に抑制され、残留圧縮強度は 258 MPa であった。

#### [実施例 12]

25 比較例 2 に用いた補強繊維と同じ補強繊維を経糸とし、実施例 1 で用いたナイロンフィラメントを緯糸 (打込み本数: 1 インチ当たり 24 本) として平織りして、炭素繊維目付 145 g/m<sup>2</sup>、ナイロンフィラメント目付 10 g/m<sup>2</sup> の炭素繊維 1 軸織物を作成したものを、金型内に [45/0/-45/90] 4S の構成で積み重ねたほかは比較例 2 と同様にして試験板を作成した。損傷面積は、

条件 2 の場合で比較例 2 に比べ 6 2 % に抑制され、残留圧縮強度は 2 5 6 M P a であった。

表 3 に比較例 2、3、実施例 1 0、1 1、1 2 の評価結果を一括して示した。

表 3

	実施例 1 0	実施例 1 1	実施例 1 2	比較例 2	比較例 3
条件 2 損傷面積 (相対値)	6 3	6 0	6 2	1 0 0	3 5
C A I (M P a)	2 5 5	2 5 8	2 5 6	1 8 8	2 1 7

#### 産業上の利用可能性

- 5 本発明のプリフォームは、レジントランスファー成形法により成形可能で、優れた強度の発現性と、優れた耐層間剥離特性を有する複合材料を与える。

## 請 求 の 範 囲

1. 強化繊維からなる補強体が積層構造を形成している繊維強化複合材料用プリフォームにおいて、その層間に熱可塑性樹脂からなり液状樹脂の移動を妨げない程度に間隙を有する層が存在することを特徴とする複合材料用プリフォーム。  
5
2. 熱可塑性樹脂からなり液状樹脂の移動を妨げない程度に間隙を有する層が熱可塑性樹脂繊維糸条からなる布帛である請求の範囲第1項記載の複合材料用プリフォーム。  
10
3. 熱可塑性樹脂からなり液状樹脂の移動を妨げない程度に間隙を有する層の目付が1から50 g/m<sup>2</sup>である請求の範囲第1項又は第2項記載の複合材料用プリフォーム。
- 15 4. 強化繊維からなる補強体が積層構造を形成している繊維強化複合材料用プリフォームにおいて、補強体の表面に熱可塑性樹脂糸条が略平行に貼付又は織込まれていることを特徴とする複合材料用プリフォーム。
5. 補強体の表面に貼付又は織込まれている熱可塑性樹脂糸条の目付が1から  
20 50 g/m<sup>2</sup>である請求の範囲第4項記載の複合材料用プリフォーム。
6. 強化繊維からなる補強体が織物であることを特徴とする請求の範囲第1項から第5項のいずれか一項記載の複合材料用プリフォーム。
- 25 7. 熱可塑性樹脂がポリアミドまたはポリイミドである請求の範囲第1項から第6項のいずれか一項記載の複合材料用プリフォーム。
8. 請求の範囲第1項から第7項のいずれか一項記載の複合材料用プリフォームを成形してなる繊維強化複合材料。



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/02319

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl.<sup>7</sup> B32B5/26, B29B11/16, B29C70/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> B32B1/00-35/00, B29B11/16, B29B15/08-15/14,  
C08J5/04-5/10, C08J5/24, B29C70/00-70/88

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-2000

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1995

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 63-203844, A (Brochier SA), 23 August, 1988 (23.08.88), Claims; page 6, lower right column; implementation example 5 & FR, 2605929, A & EP, 270411, A	1-8
X	JP, 6-501654, A (Pebrä GmbH Paul Braun), 24 February, 1994 (24.02.94) & WO, 92-06845, A	1-3, 6-8
X	JP, 5-38717, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 19 February, 1993 (19.02.93) (Family: none)	4-8

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not  
considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing  
date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is  
cited to establish the publication date of another citation or other  
special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other  
means

"P" document published prior to the international filing date but later  
than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or  
priority date and not in conflict with the application but cited to  
understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be  
considered novel or cannot be considered to involve an inventive  
step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be  
considered to involve an inventive step when the document is  
combined with one or more other such documents, such  
combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
27 June, 2000 (27.06.00)

Date of mailing of the international search report  
04 July, 2000 (04.07.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>7</sup> B32B5/26, B29B11/16, B29C70/10

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>7</sup> B32B1/00-35/00, B29B11/16, B29B15/08-15/14,  
C08J5/04-5/10, C08J5/24, B29C70/00-70/88

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-2000年

日本国公開実用新案公報 1971-1995年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 63-203844, A (プロシエール・ソシエテ・アノニム) 23. 8月. 1988 (23. 08. 88) 特許請求の範囲、第6頁右下欄、実施例5 & FR, 2605929, A & EP, 270411, A	1-8
X	JP, 6-501654, A (ベブラ ゲゼルシャフト ミット ベシュレンクテル ハフツング バウル ブラウン) 24. 2月. 1994 (24. 02. 94) & WO, 92-06845, A	1-3, 6-8

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

27. 06. 00

国際調査報告の発送日

04.07.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

川端 康之

印

4S

9156

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P, 5-38717, A (旭化成工業株式会社) 19. 2月. 1993 (19. 02. 93) ファミリーなし	4-8